

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-150163

(P2000-150163A)

(43) 公開日 平成12年5月30日 (2000.5.30)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	ターマコード* (参考)
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B
C 0 9 K 11/06	6 6 0	C 0 9 K 11/06	6 6 0

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 41 頁)

(21) 出願番号 特願平11-187807  
(22) 出願日 平成11年7月1日 (1999.7.1)  
(31) 優先権主張番号 1 9 8 2 9 9 4 7 . 8  
(32) 優先日 平成10年7月4日 (1998.7.4)  
(33) 優先権主張国 ドイツ (D E)

(71) 出願人 390023607  
バイエル・アクチエンゲゼルシャフト  
BAYER AKTIENGESELLS  
CHAFT  
ドイツ連邦共和国デ-51368 レーフェル  
クーゼン (番地なし)  
(72) 発明者 ヘルムート・ベルナー・ホイアー  
ドイツ47829クレーフェルト・カスターニエ  
ンシュトラッセ7  
(74) 代理人 100060782  
弁理士 小田島 平吉 (外1名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 硼素キレートを含むエレクトロルミネセンス組立て品

(57) 【要約】

【課題】 硼素キレートを含むエレクトロルミネセンス組立て品。

【解決手段】 基板、陽極、エレクトロルミネセンス要素及び陰極を含んでなり、但し2つの電極の少なくとも1つが可視スペクトル領域で透明であり、またエレクトロルミネセンス要素が正孔注入帯域、正孔輸送帯域、エレクトロルミネセンス帯域、電子輸送帯域及び電子注入帯域からなる群から選択される1つ又はそれ以上の帯域を特定の順序で含み、そして存在する帯域のそれぞれが言及した他の帯域の機能も果たす、エレクトロルミネセンス組立て品において、エレクトロルミネセンス要素が8-ヒドロキシキノリン誘導体の硼素錯体を含む、該エレクトロルミネセンス組立て品。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板、陽極、エレクトロルミネセンス要素及び陰極を含んでなり、但し2つの電極の少なくとも1つが可視スペクトル領域で透明であり、またエレクトロルミネセンス要素が正孔注入帯域、正孔輸送帯域、エレクトロルミネセンス帯域、電子輸送帯域及び電子注入帯域からなる群から選択される1つ又はそれ以上の帯域を特定の順序で含み、そして存在する帯域のそれぞれが言及した他の帯域の機能も果たすこともできる、エレクトロルミネセンス組立て品において、エレクトロルミネセンス要素が8-ヒドロキシキノリン誘導体の硼素錯体を含む、該エレクトロルミネセンス組立て品。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】本発明は硼素キレートを含むエレクトロルミネセンス組立て品(assembly)に関する。

【0002】エレクトロルミネセンス(EL)組立て品は、電位が適用された時に光を発し、電流が流れるということが特徴である。そのような組立て品は、長い間「発光ダイオード(LED)」の名で工業的に知られてきた。この発光は、発光を伴う正荷電(正孔)と負荷電(電子)との再結合に由来する。

【0003】エレクトロニクス又は光エレクトロニクスに対する発光成分の発達において、現在ではガリウムヒ素のような無機半導体が主に使用されている。点型表示要素は、そのような物質に基づいて製造することができるが、大面積の組立て品は可能ではない。

【0004】発光半導体ダイオードとは別に、蒸着した低分子量有機化合物に基づくエレクトロルミネセンス組立て品も公知である(米国特許第4539507号、米国特許第4769262号、米国特許第5077142号、ヨーロッパ特許第0406762号、ヨーロッパ特許第0278758号、ヨーロッパ特許第0278757号)。

【0005】更に、重合体、例えばポリ(ｐ-フェニレン)及びポリ(ｐ-フェニレン-ビニレン)(PPV)は、エレクトロルミネセンス重合体として記述されている: G. ライジング(Leising)ら、アドブ・マテル(Adv. Mater.), 4(1)(1992); フレンド(Friend)ら、J. ケム・ソク・ケム・コミュン(Chem. Soc. Chem. Commun.), 32(1992); サイトウら、ポリマー(polymer), 31, 1137(1990); フレンドら、フィジカル・レビュー(Physical Review) B, 42(18), 11670, 又はWO第90/13148号。エレクトロルミネセンス表示におけるPPVの更なる例は、ヨーロッパ特許第0443861号、WO第92/03490号及び第92/03491号に記述されている。

【0006】ヨーロッパ特許第0294061号は、ポリアセチレンに基づく光学的変調器を開示している。

【0007】ヒーガー(Heeger)らは、柔軟な重合体LEDを製造するために、可溶性の共役PPV誘導体を提案した(WO第92/16023号)。

【0008】異なる組成の重合体ブレンドも同様に公知である: M. ストルカ(Stolka)ら、ピュア・アンド・アプル・ケム(Pure & Appl. Chem.), 67(1), 175~182(1995); (H. ベスラー(Baessler)ら、アドブ・マテル, 7(6), 551(1995); ナガイら、アププ・フィズ・テット(Appl. Phys. Lett.), 67(16), 2281(1995); ヨーロッパ特許第0532798号。

【0009】有機EL組立て品は、一般に有機電荷輸送化合物を含んでなる1つまたはそれ以上の層を含む。層の順序を示す本質的な構造は次の通りである:

- 1 支持体、基板
- 2 基部(base)電極
- 3 正孔注入層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 電子輸送層
- 7 電子注入層
- 8 頂部(top)電極
- 9 接点
- 10 被覆、密閉化。

【0010】層3~7はエレクトロルミネセンス要素を表す。

【0011】この構造は最も一般的な例を示し、1つの層が複数の機能を担うならば個々の層を省くことによって簡単化できる。最も簡単な場合、EL組立て品は2つの電極とその間に位置する、発光を含むすべての機能をまかなう有機層を含んでなる。そのような系は、例えばポリ(ｐ-フェニレン-ビニレン)に基づいて、WO第90/13148号に記述されている。

【0012】多層系は、層を気相から連続的に適用する蒸着法により或いはキャスト法により組立てることができる。より速い工程速度から、キャスト法は好適である。しかしながら次の層を前の層の上に適用する場合、既に適用した層の部分的な溶解が場合によって難点となる。

【0013】本発明の目的は、通常の溶媒に対して改良された溶解性を有する新規な硼素錯体又はキレートを、エミッター(emitter)及び/又は電子導体として使用する、高い光束(light flux)を有するエレクトロルミネセンス組立て品を提供することである。これらの新規な硼素錯体は、蒸着法により気相から適用することができるべきである。

【0014】後に言及する硼素錯体を含むエレクトロルミネセンス組立て品は、これらの必要条件に合うことが発見された。以下「帯域(zone)」は「層(layer)」と同

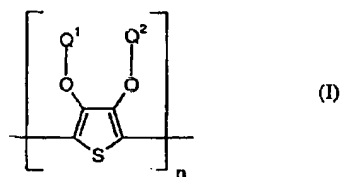
等に使用される。

【0015】従って本発明は、基板、陽極、エレクトロルミネセンス要素及び陰極を含んでなり、但し2つの電極の少なくとも1つが可視スペクトル領域で透明であり、またエレクトロルミネセンス要素が正孔注入帯域、正孔輸送帯域、エレクトロルミネセンス帯域、電子輸送帯域及び電子注入帯域からなる群から選択される1つ又はそれ以上の帯域を特定の順序で含み、そして存在する帯域のそれぞれが言及した他の帯域の機能も果たす、エレクトロルミネセンス組立て品において、エレクトロルミネセンス要素が8-ヒドロキシキノリン誘導体の硼素錯体を含む、該エレクトロルミネセンス組立て品を提供する。

【0016】正孔注入帯域は、好ましくは式(I)

【0017】

【化1】



〔式中、 $Q^1$  及び  $Q^2$  は互いに独立に水素、置換又は未置換 ( $C_1 \sim C_{20}$ ) -アルキル、 $CH_2OH$  又は ( $C_6 \sim C_{14}$ ) -アリールを表わし、或いは  $Q^1$  及び  $Q^2$  は一緒になって  $-(CH_2)_m-CH_2-$ 、但し  $m=0 \sim 12$ 、好ましくは  $1 \sim 5$ 、又は ( $C_6 \sim C_{14}$ ) -アリレンを表し、そして  $n$  は  $2 \sim 10000$ 、好ましくは  $5 \sim 5000$  の整数を表す〕の荷電されてない又はカチオンのポリチオフェンを含む。

【0018】正孔注入帯域に隣接する正孔伝導帯域は、好ましくは1つ又はそれ以上の芳香族第3級アミノ化合物、好ましくは置換又は未置換トリフェニルアミン化合物、特に好ましくは式(II)の1, 3, 5-トリス(アミノフェニル)ベンゼン化合物を含む。

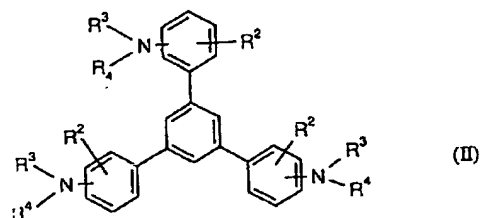
【0019】正孔注入帯域と電極の間に位置する帯域(単数又は複数)は、複数の機能を果たすこともできる。即ち1つの帯域が例えば正孔注入、正孔輸送、エレクトロルミネセンス、電子輸送及び/又は電子注入物質を含むことができる。

【0020】エレクトロルミネセンス組立て品は、更に1つ又はそれ以上の透明な重合体結合剤を含んでいてよい。

【0021】置換又は未置換1, 3, 5-トリス(アミノフェニル)ベンゼン化合物は、好ましくは一般式(I)

【0022】

【化2】



〔式中、 $R^2$  は水素、置換又は未置換アルキル、又はハロゲンを表し、 $R^3$  及び  $R^4$  は、互いに独立に、置換又は未置換 ( $C_1 \sim C_{10}$ ) -アルキル、アルコキシカルボニル置換 ( $C_1 \sim C_{10}$ ) -アルキル、或いは置換又は未置換アリール、アラルキル又はシクロアルキルを表し、 $R^3$  及び  $R^4$  は、好ましくは、互いに独立に ( $C_1 \sim C_6$ ) -アルキル、特にメチル、エチル、 $n$ -又はイソプロピル、 $n$ -、イソ-、 $sec$ -又は $tert$ -ブチル、( $C_1 \sim C_4$ ) -アルコキシカルボニル- ( $C_1 \sim C_6$ ) -アルキル、例えばメトキシカルボニル-、エトキシカルボニル-、プロポキシカルボニル-又はブトキシカルボニル- ( $C_1 \sim C_4$ ) -アルキル、或いは未置換又は ( $C_1 \sim C_4$ ) -アルキル-及び/又は ( $C_1 \sim C_4$ ) -アルコキシ置換フェニル- ( $C_1 \sim C_4$ ) -アルキル、ナフチル- ( $C_1 \sim C_4$ ) -アルキル、シクロペンチル、シクロヘキシル、フェニル又はナフチルを表す〕の芳香族第3級アミノ化合物を表す。

【0023】特に好ましくは、 $R^3$  及び  $R^4$  は互いに独立に、未置換のフェニル又はナフチル、或いは1~3つのメチル、エチル、 $n$ -又はイソプロピル、メトキシ、エトキシ、 $n$ -及び/又はイソプロポキシ基で置換されたフェニル又はナフチルを表す。

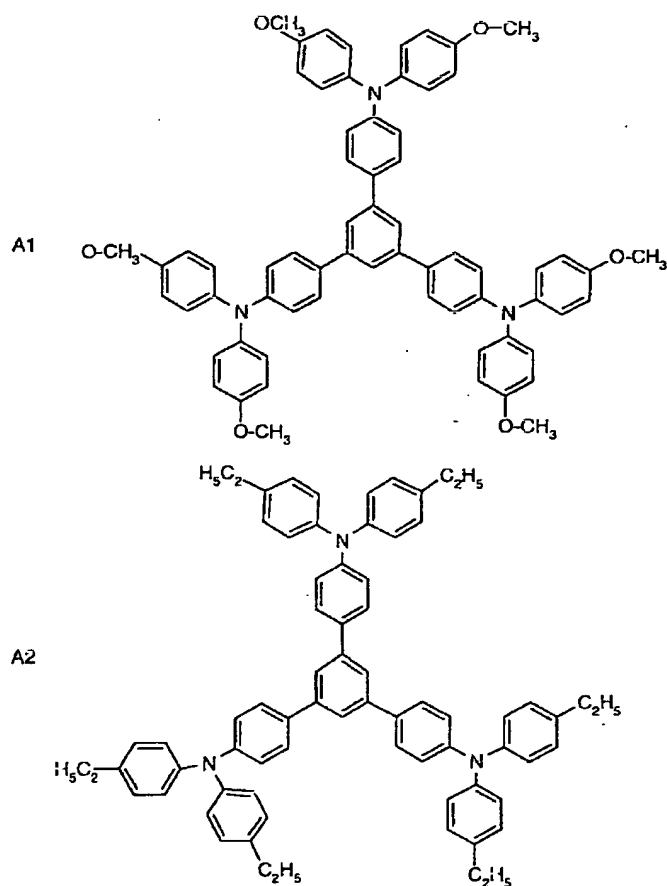
【0024】 $R^2$  は好ましくは水素又は ( $C_1 \sim C_6$ ) -アルキル、例えばメチル、エチル、 $n$ -又はイソプロピル、 $n$ -、イソ-、 $sec$ -又は $tert$ -ブチル、或いは塩素を表す。

【0025】そのような化合物及びその製造法は、電子写真に使用するために米国特許第4923774号に記載されている。ここにこの特許は、特に本明細書に参考文献として引用される。トリスニトロフェニル化合物は、例えばラネーニッケルの存在下における、一般的に公知の接触水素化によりトリシアミノフェニル化合物に転化できる〔フーベン(Houben)-ワイル(Weyl)4/1C、14-102、ウルマン(Ulman)(4)、13、135~148〕。このアミノ化合物は一般的に公知のようにして未置換のハロゲンベンゼンと反応せしめられる。

【0026】次の化合物は例として言及できる：

【0027】

【化3】



第3級アミノ化合物とは別に、例えば第3級アミノ化合物との混合物の形の更なる正孔導体も、エレクトロルミネセンス要素を組立てるために使用できる。更なる正孔導体（単数又は複数）は、一方で異性体の混合物を含む式（II）の1つ又はそれ以上の化合物、或いは他方で正孔輸送化合物と一般式（II）の且つ種々の構造を持つ第3級アミノ化合物との混合物であってよい。

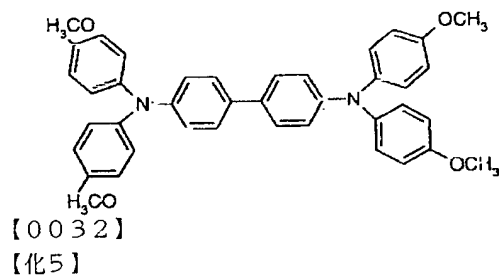
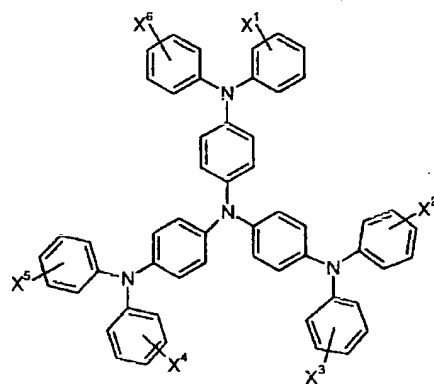
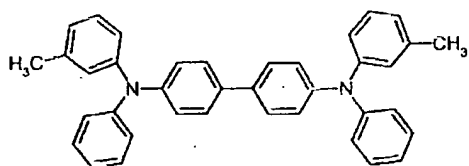
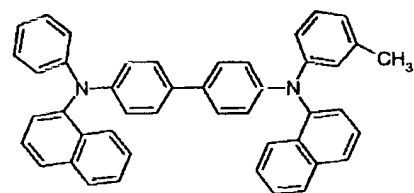
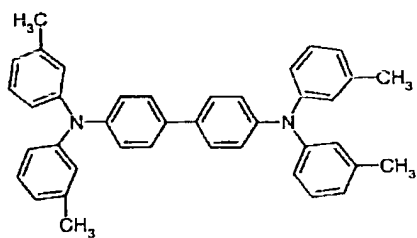
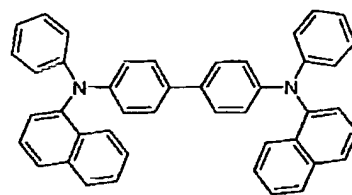
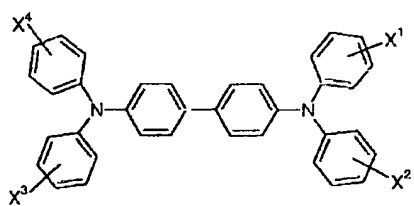
【0028】可能な正孔注入及び正孔導体材料は、ヨーロッパ特許第0532798号に列挙されている。

【0029】芳香族アミンの混合物の場合、これらの化合物はいずれかの割合で使用することができる。

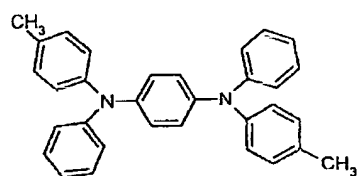
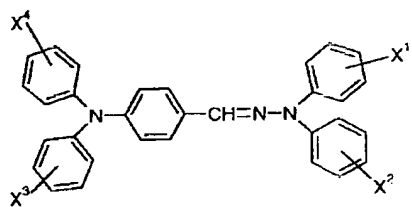
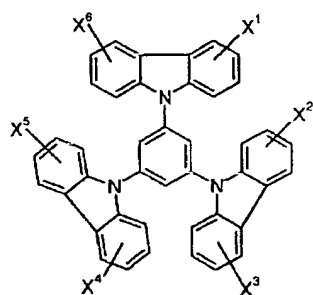
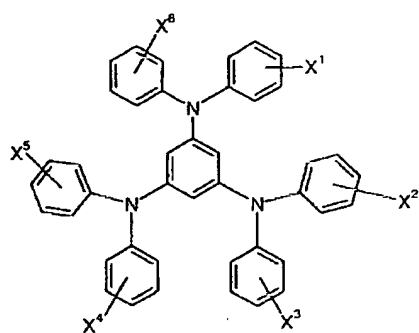
【0030】言及しうる例は次のようである：正孔伝導性を有し且つ純粋形で又は第3級アミノ化合物に対する混合相手として使用できる材料は、例えば次の化合物である：但し、 $X^1 \sim X^6$  は互いに独立に、H、ハロゲン、アルキル、アリール、アルコキシ、アリーロキシを表し、Meはメチルを示す。

【0031】

【化4】

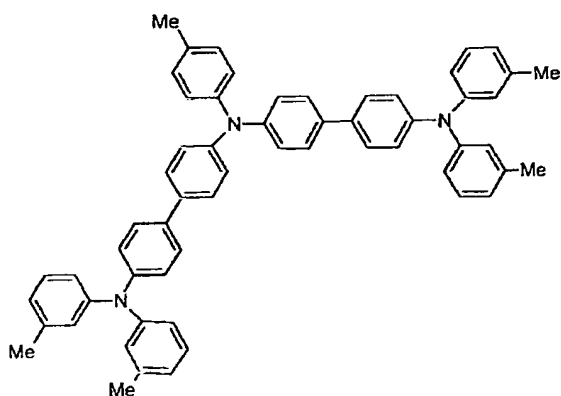
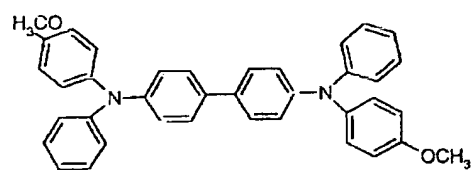
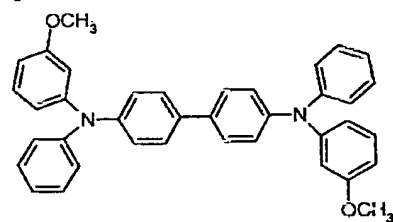


【0033】  
【化6】



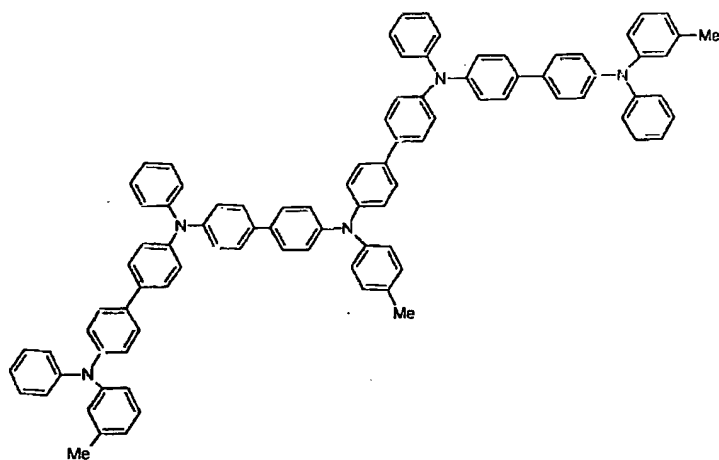
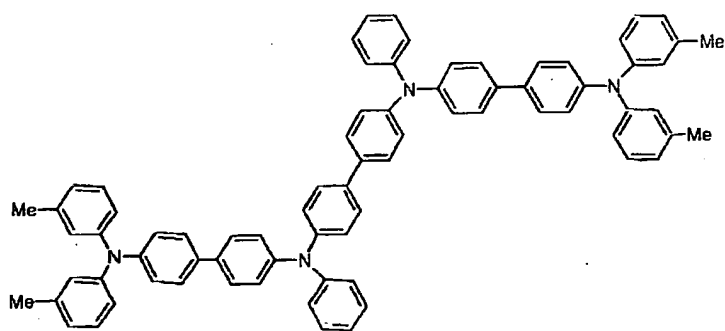
【0034】

【化7】



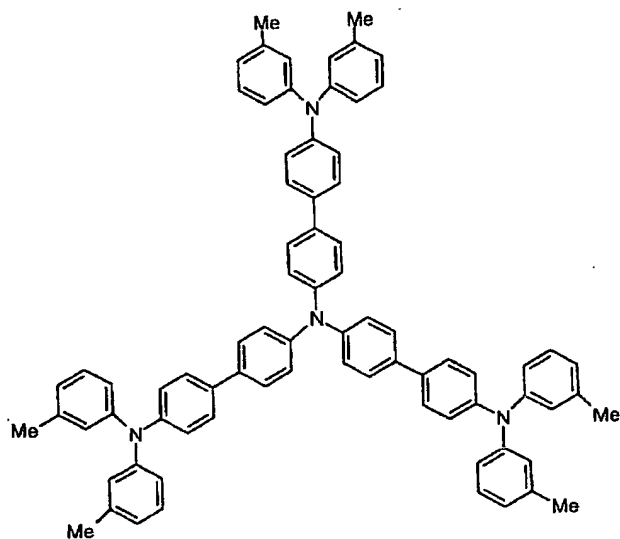
【0035】

【化8】



【0036】

【化9】



これらの及び更なる例は、J. フィズ・ケム (Phy a. Chem. ), 97, 6240~6248 (1993) 及びアプル・フィズ・テット, 66 (20), 2679~2681 に記述されている。

【0037】一般に異なった基本構造及び／又は異なった置換パターンを有する種々のアミンは、混合することができる。

【0038】 $X^1 \sim X^6$  は好ましくは、互いに独立に、

水素、フッ素、塩素、臭素、 $(C_1 \sim C_{10})$  -、特に  $(C_1 \sim C_4)$  -アルキル又は-アルコキシ、フェニル、ナフチル、フェノキシ及び／又はナフチロキシを表す。この芳香族環は1、2、3又は4つの、同一の又は異なる基 $X^1 \sim X^6$  で置換されていてもよい。

【0039】式(1)の構造繰返し単位を有するポリチオフェンは公知である(参照、ヨーロッパ特許第0440958号及び第0339340号)。本発明で使用

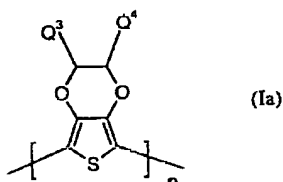
される分散液又は溶液の調製は、ヨーロッパ特許第0440957号及び独国特許第4211459号に記述されている。分散液又は溶液中のポリチオフェンは、好ましくは例えば中性チオフェンの酸化剤での処理により得られるようなカチオン形で使用される。この酸化には通常の酸化剤、例えば過酸化二硫酸カリウムが使用される。酸化は、酸化数及び位置がはっきりと決定できないから式に示してない正荷電をポリチオフェンに与える。それらは、ヨーロッパ特許第0339340号に記述された方法を用いて支持体上で直接作ることができる。

【0040】式(I)における $Q^1$ 及び $Q^2$ は、好ましくは $-(CH_2)_m-CH_2-$ 、但し $m=1\sim4$ であり、非常に特に好ましくはエチレンである。

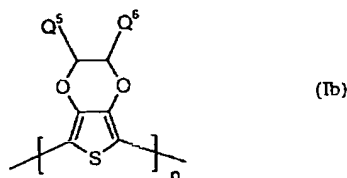
【0041】好適なカチオン性又は中性のポリジオキシチオフェンは、式(Ia)又は(Ib)の構造単位を含んでなる：

【0042】

【化10】



(Ia)



(Ib)

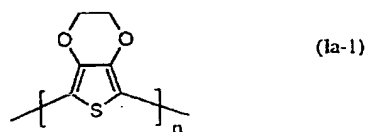
〔式中、 $Q^3$ 及び $Q^4$ は互いに独立に水素或いは置換又は未置換の $(C_1\sim C_{18})$ -アルキル、好ましくは $(C_1\sim C_{10})$ -、特に $(C_1\sim C_6)$ -アルキル、 $(C_2\sim C_{12})$ -アルケニル、好ましくは $(C_2\sim C_8)$ -アルケニル、 $(C_3\sim C_7)$ -シクロアルキル、好ましくはシクロペンチル又はシクロヘキシル、 $(C_7\sim C_{15})$ -アラルキル、好ましくはフェニル- $(C_1\sim C_4)$ -アルキル、 $(C_6\sim C_{10})$ -アリール、好ましくはフェニル又はナフチル、 $(C_1\sim C_{18})$ -アルコキシ、好ましくは $(C_1\sim C_{10})$ -アルコキシ、好ましくはメトキシ、エトキシ、 $n$ -又はイソプロポキシ或いは $(C_2\sim C_{18})$ -アルキロキシエステルを表し、及び $Q^5$ 及び $Q^6$ は互いに独立に水素或いはそれぞれ少なくとも1つのスルホネート基で置換された $(C_1\sim C_{18})$ -アルキル、好ましくは $(C_1\sim C_{10})$ -、特に $(C_1\sim C_6)$ -アルキル、 $(C_2\sim C_{12})$ -アルケニル、好ましくは $(C_2\sim C_8)$ -アルケニル、 $(C_3\sim C_7)$ -シクロアルキル、好ましくはシクロペンチル又はシクロヘキシル、 $(C_7\sim C_{15})$ -アラルキル、好ましくはフェニル- $(C_1\sim C_4)$ -アルキル、 $(C_6\sim C_{10})$ -アリール、好ましくはフェニル又はナフチル、 $(C_1\sim C_{18})$ -

アルコキシ、好ましくはメトキシ、エトキシ、 $n$ -又はイソプロポキシ或いは $(C_2\sim C_{18})$ -アルキロキシエステルを表し、但し $Q^5$ が水素を表すならば $Q^6$ は水素でなく、また又 $Q^6$ が水素を表すならば $Q^5$ は水素でなく、そして $n$ は $2\sim10000$ 、好ましくは $5\sim5000$ の整数を表す〕の構造単位を含んでなる。

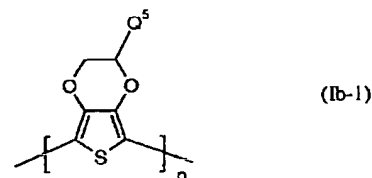
【0043】特に好適な物は、式(Ia-1)及び(Ib-1)

【0044】

【化11】



(Ia-1)



(Ib-1)

〔式中、 $Q^5$ および $n$ は上に定義した通りである〕のカチオン又は荷電されていないポリチオフェンである。

【0045】正電荷を均衡させるために、ポリチオフェンからのカチオンはアニオン、好ましくはポリアニオンを含む。

【0046】存在するポリアニオンは、好ましくは重合体カルボン酸、例えばポリアクリル酸、ポリメタクリル酸又はポリマレイン酸および重合体スルホン酸、例えばポリスチレンスルホン酸およびポリビニルスルホン酸のアニオンである。これらのポリカルボン酸及びポリスルホン酸は、ビニルカルボン酸およびビニルスルホン酸と他の重合しうる単量体、例えばアクリレートおよびスチレンとの共重合体であってもよい。

【0047】ポリスチレンスルホン酸のアニオンは対イオン(counterion)として特に好適である。

【0048】ポリアニオンを形成するポリ酸の分子量は好ましくは $1000\sim2000000$ 、特に好ましくは $2000\sim500000$ である。ポリ酸、例えばポリスチレンスルホン酸及びポリアクリル酸又はそのアルカリ金属塩は市販されており、或いは公知の方法で製造することができる(参照、フーベン・ワイル著、有機化学法、第E20巻、高分子、第2部(1987)、1141ページ以降)。

【0049】ポリジオキシチオフェン及びポリアニオンの分散液の製造に必要とされる遊離のポリ酸の代わりに、ポリ酸及び対応する量のモノ酸のアルカリ金属塩の混合物も使用できる。

【0050】式(Ib)及び(Ib-1)の場合、ポリジオキシチオフェンは単量体単位自体において正及び負



の荷電を持つ。

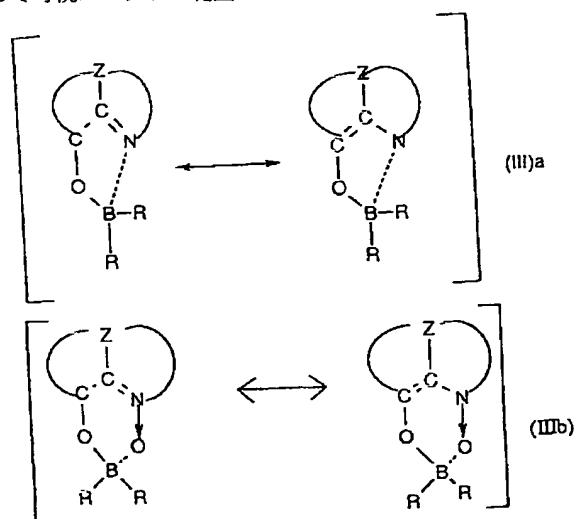
【0051】本発明の組立て品は、所望により結合剤として重合体及び／又は共重合体、例えばポリカーボネート、ポリエステルカーボネート、スチレンの共重合体、例えばSAN又はスチレン-アクリレート、ポリスルホン、ビニル含有単量体に基づく重合体、例えばポリ(メト)アクリレート、ポリビニルピロリドン、ポリビニルカルバゾール、酢酸ビニル及びビニルアルコール重合体及び共重合体、ポリオレフィン、環式オレフィン共重合体及びフェノキシ樹脂などを含む。種々の重合体の混合物を用いることも可能である。この重合体結合剤は、10000~2000000g/モルの分子量を有し、可溶で、フィルムを形成でき、そして可視スペクトル範囲

において透明である。これらは、例えば重合体科学及び工学辞典(Encyclopedia of Polymer Science and Engineering)、第2版、ウィリーインターサイエンス出版(Wiley-Interscience)に記述されている。これは普通エレクトロルミネセンス要素の全重量に基づいて95重量%まで、好ましくは80重量%までの量で使用される。

【0052】硼素錯体(硼素キレート)は、好ましくは一般式(III)a又は(III)b

【0053】

【化12】



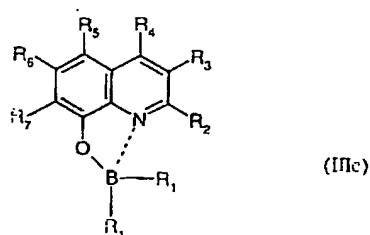
【式中、Zは2つの形とは関係なく、少なくとも2つの融合環を含んでなる構造を完成する原子を表し、Rはアリール基又はF原子を表す】の化合物である。

【0054】Zは、1つがアゾール又はアジン環である少なくとも2つの融合環を含んでなる複素環式分子部分を含んでなる。但し2つの融合環には、更に更なる脂肪族又は芳香族環が結合していてもよい。更に、環には更なる脂肪族基又はハロゲン原子が結合していてもよい。

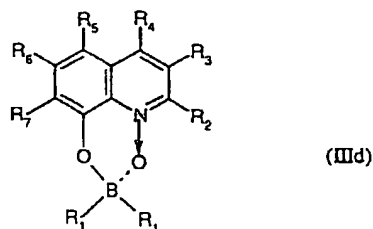
【0055】化合物(III)は、特に好ましくは一般式(IIIc)又は(IIId)

【0056】

【化13】



(IIIc)



(III d)

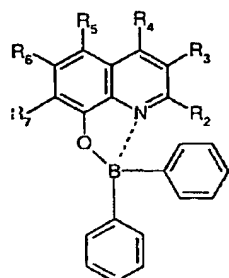
【式中、R<sub>1</sub>は置換又は未置換(C<sub>6</sub>~C<sub>10</sub>)-アリール又はハロゲンを表し、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>は、互いに独立に、水素、置換もしくは未置換(C<sub>1</sub>~C<sub>16</sub>)-アルキル又はハロゲン或いはスルホンアミド又はシアノ又は置換もしくは未置換アミノ基を表

す]の化合物を表す。

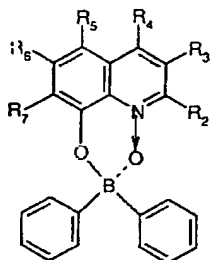
【0057】化合物(III)は、非常に特に好ましくは一般式(IIIe)、(IIIf)又は(IIIg)

【0058】

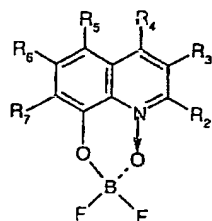
【化14】



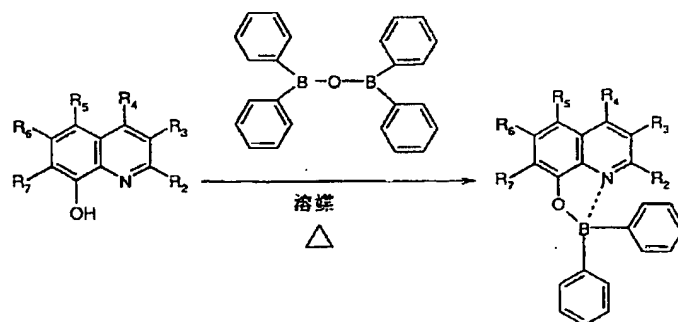
(IIIe)



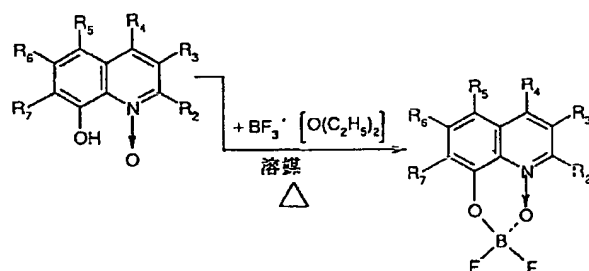
(IIIf)



(IIIg)



又は



化合物(III)の例は次の通りである：

【式中、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 及び $R_7$ は、互いに独立に、特に水素、分枝もしくは未分枝の( $C_1 \sim C_{12}$ )-アルキル、例えばメチル、エチル又は4-エチル-1-メチルオクチル、又は塩素或いはスルホンアミド基又はシアノ又は置換アミノ基を表す]の化合物を表す。

【0059】そのような化合物及びその製造法は、化学分析において蛍光化合物として公知であり、例えばE. ホハウス(Hohaus)、F. ウムランド(Umland)、ケム・ベル(Chem. Ber.)、102、4025組立て品4031(1969)に記述されている。

【0060】溶媒の選択においてだけ異なる一般的な合成スキームは次の通りである：

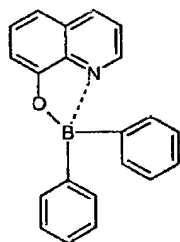
【0061】

【化15】

【0062】

【化16】

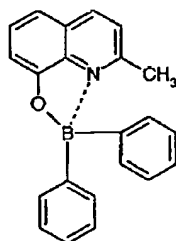
B1)



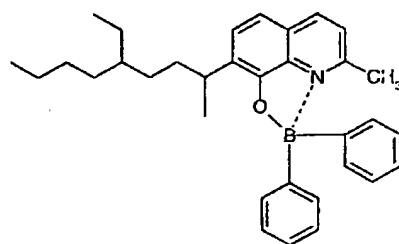
【0063】

【化17】

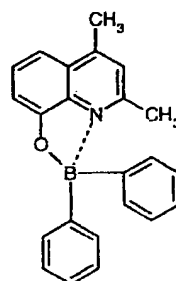
B2)



B3)



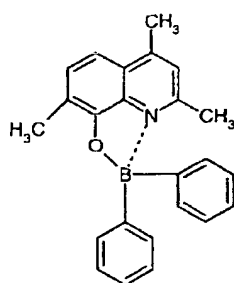
B4)



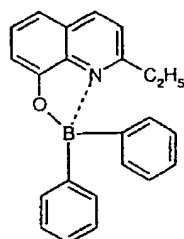
【0064】

【化18】

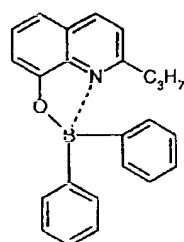
B5)



B6)



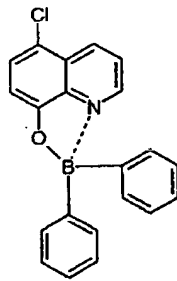
B7)



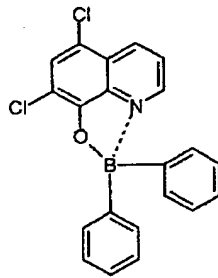
【0065】

【化19】

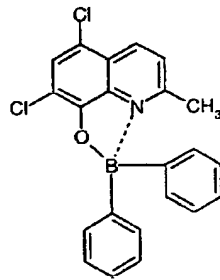
B8)



B9)



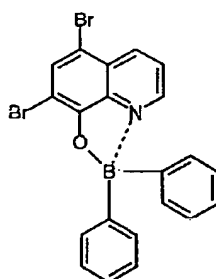
B10)



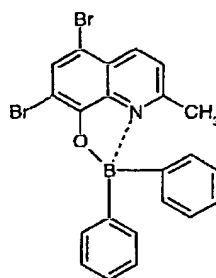
【0066】

【化20】

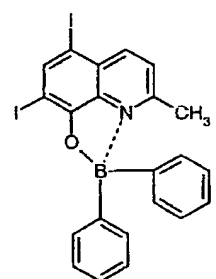
B11)



B12)



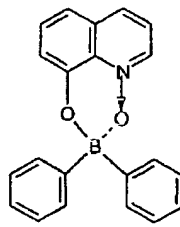
B13)



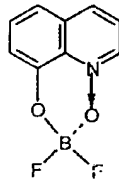
【0067】

【化21】

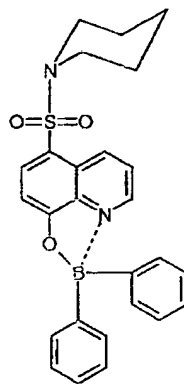
B14)



B15)

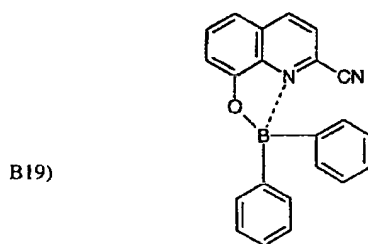
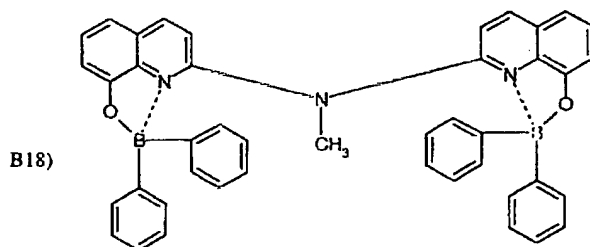
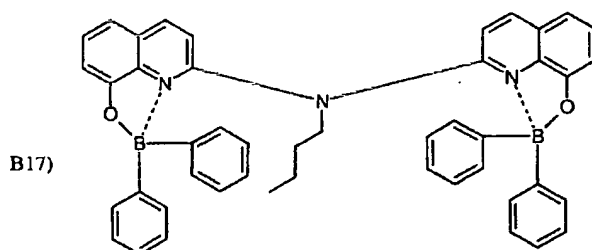


B16)



【0068】

【化22】



上式B1～B19の1つ又はそれ以上の化合物を使用することも可能である。

【0069】8-ヒドロキシキノリン配位子のいくつかは市販されており、或いは公知の方法又は有機化学で製造することができる[R. G. W. ホリングスヘッド (Hallingshead)、第1巻、第6章、ブタワーズス (Butterworths, London) (1954)]。

【0070】エレクトロルミネセンス要素を製造するためには、硼素錯体及び所望により第3級アミノ化合物及び結合剤を適当な溶媒に溶解し、キャストイング、ドクターブレードコーティング、又はスピンコーティングにより適当な基板に適用する。しかしながら所望により、硼素錯体は蒸着法により層として別に適用することもできる。基板は、例えば透明な電極を備えたガラス又は重合体材料であってよい。重合体材料としては、例えばポリカーボネート、ポリエステル、例えばポリエチレンテレフタレート又はポリエチレンナフタレート、ポリスルホン又はポリイミドのフィルムを使用することができる。

【0071】適当な透明電極は次に通りである：

a) 金属酸化物、例えばインジウム-錫酸化物 (IT

O)、酸化錫 (NES A)、酸化亜鉛、ドーパした酸化錫、ドーパした酸化亜鉛など、

b) 半透明性金属フィルム、例えばAu、Pt、Ag、Cuなど、

c) 伝導性重合体フィルム、例えばポリアニリン、ポリチオフェンなど。

【0072】金属酸化物電極及び半透明性金属フィルム電極は、蒸着、スパッタリング、メッキなどのような技術により、薄層で適用される。電導性重合体フィルムはスピンコーティング、ドクターブレードコーティングなどのような技術により溶液から適用される。

【0073】透明電極の厚さは3 nm～数μm、好ましくは10～500 nmである。

【0074】エレクトロルミネセンス層は、透明な電極に又は存在しうる電荷輸送層に直接薄いフィルムとして適用される。このフィルムの厚さは10～500 nm、好ましくは20～400 nm、特に好ましくは50～250 nmである。

【0075】対極を適用する前に、更なる電荷輸送層をエレクトロルミネセンス層上に挿入してもよい。

【0076】正孔導体又は電子導体材料であってよく、また重合又は低分子量形で、所望によりブレンドとして



存在しうる適当な中間電荷輸送層は、ヨーロッパ特許第0532798号に列挙されている。特に適当な電荷輸送材料は、正孔輸送性を有する特定に置換されたポリチオフェンである。それらは例えばヨーロッパ特許第0686662号に記述されている。

【0077】低分子量正孔導体の、重合体結合剤中の含量は、2～97重量%の範囲内で変えることができる。但しこの含量は、好ましくは5～95、特に好ましくは10～90、更に特に10～85重量%である。正孔注入又は正孔伝導帯域は、種々の方法で付着させることができる。

【0078】フィルム形成正孔導体は、純粹形(100%正孔導体)で使用することもできる。所望により、正孔注入又は正孔伝導帯域も、エレクトロルミネセンス物質を含むことができる。

【0079】完全に低分子量化合物からなるブレンドは、蒸着させることができる。低分子量化合物の他に結合剤を含んでいてよい可溶で、フィルムを形成するブレンドは、例えばスピニング、キャストイング又はドクターブレードコーティングにより溶液から付着させる。

【0080】放出及び/又は電子伝導物質を、正孔伝導層に別の層で適用することも可能である。ここに放出(emitting)物質は、化合物(II)を含む層にドーパントとして添加することもでき、更に電子伝導

質を適用してもよい。エレクトロルミネセンス物質は、電子注入又は電子伝導層に添加することもできる。

【0081】重合体結合剤中の低分子量電子導体の含量は、2～95重量%の範囲内で変えることができる。但しこの含量は、好ましくは5～90、特に好ましくは10～85重量%である。フィルム形成電子導体は、純粹形(100%正孔導体)で使用することもできる。

【0082】対極は、透明であってよい伝導性物質を含んでなる。これらは、好ましくは金属、例えばAl、Au、Ag、Mg、Inなど、又は合金及びこれらの酸化物であり、蒸着、スパッタリング、メッキのような技術で適用できる。

【0083】本発明の組立て品は、2つの電極に連結された2つの電氣的リード線(電線)で電源に連結される。

【0084】0.1～100ボルトの範囲のDC電位を適用した時、組立て品は200～2000nmの波長の光を放出する。これらは200～2000nmの範囲のホトルミネセンスを示す。

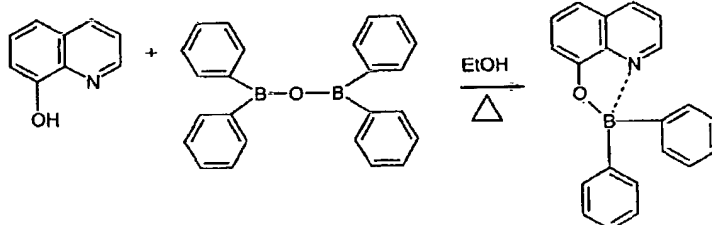
【0085】本発明の組立て品は、発光装置及び情報提示装置を製造するのに適当である。

【0086】

【実施例】実施例1

【0087】

【化23】



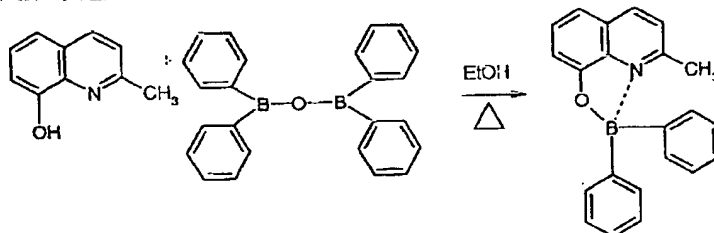
新しく再結晶した8-ヒドロキシキノリン0.5g(3.44ミリモル)及びジフェニル硼酸無水物1.19g(3.44ミリモル)並びに無水エタノール120mlを、反応容器に入れ、保護N<sub>2</sub>雰囲気下に2時間還流させた。冷却してから数時間後、黄緑色の溶液から黄色の固体が沈殿した。続いてこの固体をエタノールから再結晶した。乾燥後、強い黄色を有する固体0.94

g(理論量の凡そ88.4%)を得た。この固体は、固体状態で強い黄緑色の蛍光を示し、メタノールに十分溶解した。

実施例2

【0088】

【化24】



新しく再結晶した8-ヒドロキシキノナルジン0.5g(3.14ミリモル)及びジフェニル硼酸無水物1.09g(3.14ミリモル)並びに無水エタノール50mlを、反応容器に入れ、保護N<sub>2</sub>雰囲気下に6時間還

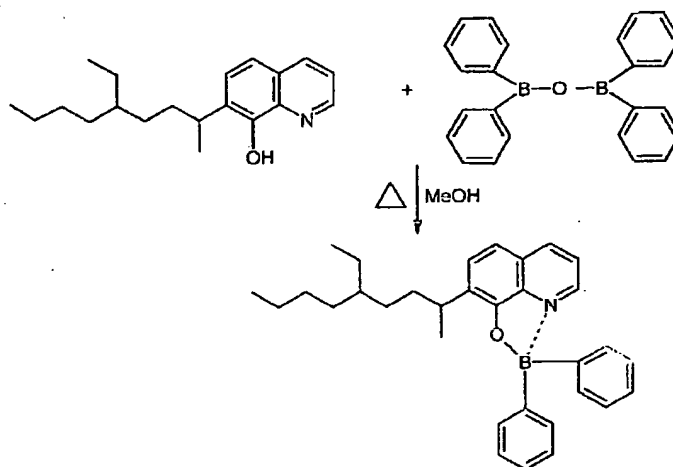
流させた。冷却してから数時間後、黄緑色の溶液から黄色の固体が沈殿した。続いてこの固体をエタノールから再結晶した。乾燥後、強い黄色を有する固体0.9g(理論量の凡そ88.7%)を得た。この固体は、固体

状態で強い黄緑色の蛍光を示し、メタノールに十分溶解した。

【0089】

【化25】

### 実施例3



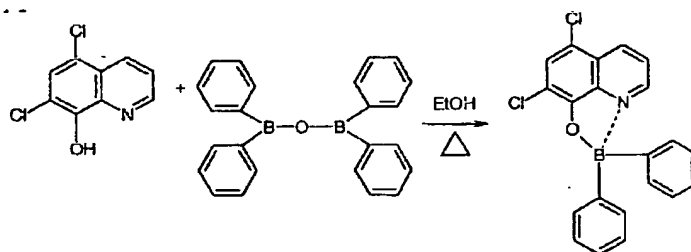
予めカラムクロマトグラフィーで精製した7-(4-エチル-1-メチロキチル)-8-ヒドロキシキノリン 1 g (3.34ミリモル) 及びジフェニル硼酸無水物 1.16 g (3.34ミリモル) を無水エタノール 100 ml と一緒に、反応容器に入れ、保護 $N_2$  雰囲気下に7時間還流させた。これは黄緑色の蛍光を有する反応混合物を与えた。これを回転蒸発器で蒸発させた。クロ

マトグラフィーによる粗生成物の精製後、強い黄緑色の蛍光を有する生成物 0.8 g (理論量の51%) を得た。

### 実施例4

【0090】

【化26】



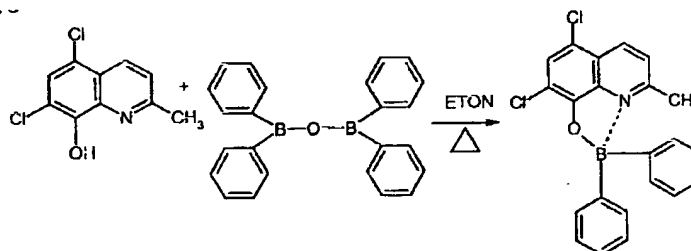
新しく再結晶した5,7-ジクロロ-8-ヒドロキシキノリン 0.6 g (2.8ミリモル) 及びジフェニル硼酸無水物 0.97 g (2.8ミリモル) を無水エタノール 250 ml と一緒に、反応容器に入れ、保護 $N_2$  雰囲気下に4時間還流させた。黄緑色の溶液から黄色の固体が沈殿した。続いてこの固体をエタノールから再結晶した。乾燥後、強い黄色を有する固体 1 g (理論量の凡そ

94.5%) を得た。この固体は、固体状態で強い黄緑色の蛍光を示し、メタノール及びエタノールに十分溶解した。

### 実施例5

【0091】

【化27】



新しく再結晶した5,7-ジクロロ-8-ヒドロキシキノリン 0.7 g (3.06ミリモル) 及びジフェニル

硼酸無水物 1.06 g (3.06ミリモル) を無水エタノール 100 ml と一緒に、反応容器に入れ、保護 $N_2$

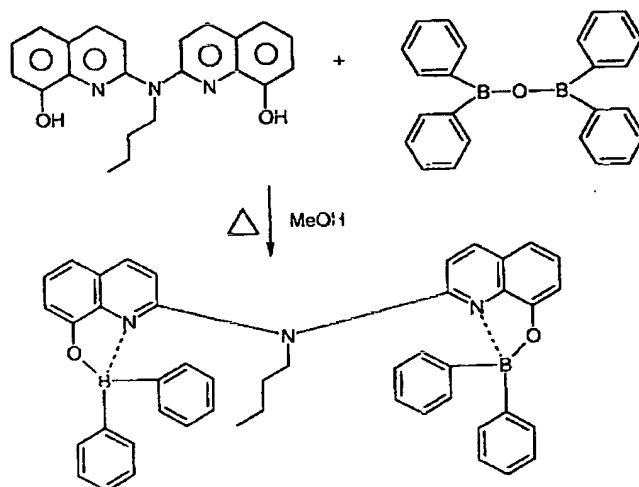
2 雰囲気下に8時間還流させた。黄緑色の溶液から黄色の固体が沈殿した。続いてこの固体をエタノールから再結晶した。乾燥後、強いレモン黄色を有する固体1.19g(理論量の凡そ91.7%)を得た。この固体は、固体状態で強い黄緑色の蛍光を示し、メタノールに十分

溶解した。

実施例6

【0092】

【化28】



N-ブチル-2,2'-イミノ-ビス(8-ヒドロキシキノリン) 1g(2.78ミリモル)及びジフェニル硼酸無水物 1.92g(5.56ミリモル)を無水メタノール50mlと一緒に、反応容器に入れ、保護N<sub>2</sub>雰囲気下に5時間還流させた。冷却してから数時間後、黄色の蛍光を有する溶液からレモン黄色の固体が沈殿した。続いてこの固体をエタノールから再結晶した。乾燥後、強いレモン黄色を有する固体1.29g(理論量の凡そ67.5%)を得た。この固体は、固体状態で強い黄色の蛍光を示し、メタノールに十分溶解した。

【0093】実施例：物理的性質

実施例1

10mmの石英セル中における400nmでの吸光度がA=0.05であるように、物質B1をジクロロエタンに溶解した。この溶液に対して、蛍光分光器[エジンバラ(Edinburgh)、FS900]を用いて蛍光スペクトルと励起スペクトルを記録した。励起スペクトルの最大値は372nmであり、発光の最大値は500nmであった。この物質の、 $\lambda_{ex}=372\text{nm}$ での励起におけるジクロロエタン中での量子収率(quantum yield)は $\Phi=0.34$ であった。

【0094】実施例2

物質B2を用いて実施例1の方法を繰り返した。励起スペクトルの最大値は372nmであり、発光の最大値は500nmであった。この物質の、 $\lambda_{ex}=372\text{nm}$ での励起におけるジクロロエタン中での量子収率は $\Phi=0.40$ であった。

【0095】実施例3

物質B9を用いて実施例1の方法を繰り返した。励起スペクトルの最大値は410nmであり、発光の最大値は

533nmであった。この物質の、 $\lambda_{ex}=410\text{nm}$ での励起におけるジクロロエタン中での量子収率は $\Phi=0.094$ であった。

【0096】実施例4

物質B11を用いて実施例1の方法を繰り返した。励起スペクトルの最大値は411nmであり、発光の最大値は536nmであった。この物質の、 $\lambda_{ex}=411\text{nm}$ での励起におけるジクロロエタン中での量子収率は $\Phi=0.056$ であった。

【0097】実施例5

本発明による物質B1を用いて、有機発光ダイオード(OLED)を製造した。このOLEDの製造には次の方法を使用した：

1、ITO基板の清浄

ITO被覆ガラス[メルク・バルザース社(Merck Balzers AG、FL)、パート番号253674XO]を50mm×50mm片(基板)に切断した。続いてこの基板を3%水性ムカゾール(Mukasol)溶液に入れ、超音波で15分間清浄した。ついで基板を蒸留水で洗い、遠心により回転乾燥した。この洗浄及び乾燥工程を10回繰り返した。

【0098】2、ベイトロン(Baytron<sup>®</sup>)P層の、ITOへの適用

1. 3%ポリエチレンジオキシチオフェン/ポリスチレンスルホン酸溶液[バイエル社(Bayer)、ベイトロンP]約10mlを濾過した[ミリポア(Millipore)HV、0.45 $\mu\text{m}$ ]。続いて基板をスピコーティング機の上に置き、先に濾過した溶液を基板のITO塗布面に広げた。続いて基板上の過剰な溶液を、コーティング機の回転により500rpmで3分間吹き

飛ばした。このようにして塗布した基板をホットプレート上で5分間、110℃で乾燥した。層の厚さは60nmであった[テンコー(Tencor)、アルファステップ(Alphastep)200]。

#### 【0099】3、正孔伝導層の適用

ポリビニルカルバゾール(BASF、Luvican)1重量部、フェニルアミン[アグファージェベルト(Agfa-Gebaert)、化合物A1]1重量部及びフェニルアミン[アグファージェベルト、A2]1重量部の1.5%ジクロロエタン溶液5mlを濾過し(ミリポアHV、0.45μm)、乾燥したベイトロンP層上に広げた。続いて基板上的過剰な溶液を、コーティング機の回転により800rpmで30秒間吹き飛ばした。このようにして塗布した基板をホットプレート上で5分間、110℃で乾燥した。全体の層の厚さは150nmであった。

#### 【0100】4、発光/電子注入層の蒸着による適用

第3の有機層、即ち本発明による物質B1を、熱蒸着により2つの有機層上に適用した。これは蒸着装置[レイホルド(Leyhold)、ユニベックス(Univex)350]中で行なった。蒸着中の蒸着装置の圧力は $10^{-3}$ Paであり、蒸着速度は2Å/秒であった。3つの有機層の全体の厚さは200nmであった。

#### 【0101】5、金属陰極の蒸着による適用

金属電極を、蒸着による有機層系に適用した。この目的のために、基板を、有孔マスク(孔直径:5mm)上、有機相を下方に向けて配置した。 $10^{-3}$ Paの圧力において、元素Mg及びAgを2つの蒸発ポートから平行に蒸発させた。Mgの蒸着速度は2Å/秒であった。蒸着した金属接点の厚さは500nmであった。

【0102】有機LEDの2つの電極を、電気的リード線により電源に連結した。正極をITO電極に連結し、負極をMg-Ag電極に連結した。

【0103】2.5ボルトにすぎない電圧から、フォトダイオード(EG&G C30809E)により、エレクトロルミネセンスを検知することができた。6ボルトの電圧において、単位面積当たりの電流は $1\text{mA}/\text{cm}^2$ であり、エレクトロルミネセンスは容易に見ることができた。その色は( $x=0.302$ ;  $y=0.4$ )であった。

#### 【0104】実施例6

本発明による物質B9を用いて、有機発光ダイオード(OLED)を製造した。

【0105】OLEDの製造及び電気的駆動は、第3の有機層の本発明による物質B9を、熱蒸着により最初の2つの層に適用する以外、実施例5に記述したように行なった。これは蒸着装置[レイホルド、ユニベックス350]中で行なった。蒸着中の蒸着装置の圧力は $10^{-3}$ Paであり、蒸着速度は2Å/秒であった。3つの有機

層の全体の厚さは200nmであった。

【0106】有機LEDの2つの電極を、電気的リード線により電源に連結した。正極をITO電極に連結し、負極をMg/Ag電極に連結した。

【0107】2.5ボルトにすぎない電圧から、フォトダイオード(EG&G C30809E)により、エレクトロルミネセンスを検知することができた。4ボルトの電圧において、単位面積当たりの電流は $1\text{mA}/\text{cm}^2$ であり、エレクトロルミネセンスは容易に見ることができた。その色は( $x=0.412$ ;  $y=0.482$ )であった。

#### 【0108】実施例7

本発明による物質B8を用いて、有機発光ダイオード(OLED)を製造した。

【0109】OLEDの製造及び電気的駆動は、第3の有機層として本発明による物質B8を、熱蒸着により最初の2つの層に適用する以外、実施例5に記述したように行なった。これは蒸着装置[レイホルド、ユニベックス350]中で行なった。蒸着装置の圧力は $10^{-3}$ Paであり、蒸着速度は2Å/秒であった。3つの有機層の全体の厚さは200nmであった。

【0110】有機LEDの2つの電極を、電気的リード線により電源に連結した。正極をITO電極に連結し、負極をMg/Ag電極に連結した。

【0111】4.5ボルトの電圧から、フォトダイオード(EG&G C30809E)により、エレクトロルミネセンスを検知することができた。12ボルトの電圧において、単位面積当たりの電流は $1\text{mA}/\text{cm}^2$ であり、エレクトロルミネセンスは容易に見ることができた。そのエレクトロルミネセンスの色は緑青色であった。

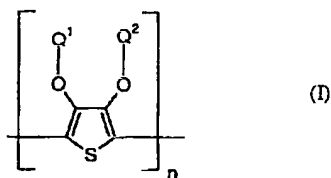
【0112】本発明の特徴及び態様は以下の通りである。

【0113】1. 基板、陽極、エレクトロルミネセンス要素及び陰極を含んでなり、但し2つの電極の少なくとも1つが可視スペクトル領域で透明であり、またエレクトロルミネセンス要素が正孔注入帯域、正孔輸送帯域、エレクトロルミネセンス帯域、電子輸送帯域及び電子注入帯域からなる群から選択される1つ又はそれ以上の帯域を特定の順序で含み、そして存在する帯域のそれぞれが言及した他の帯域の機能も果たす、エレクトロルミネセンス組立て品において、エレクトロルミネセンス要素が8-ヒドロキシキノリン誘導体の硼素錯体を含む、該エレクトロルミネセンス組立て品。

【0114】2. 正孔注入帯域が式(I)

【0115】

【化29】

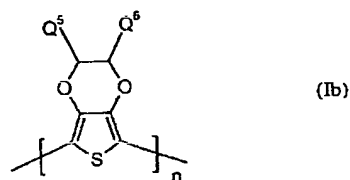
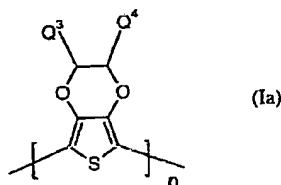


〔式中、Q¹ 及び Q² は互いに独立に水素、置換又は未置換 (C<sub>1</sub> ~ C<sub>20</sub>) -アルキル、CH<sub>2</sub> OH又は (C<sub>6</sub> ~ C<sub>14</sub>) -アリールを表わし、或いはQ¹ 及びQ² は一緒になって - (CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub> - CH<sub>2</sub> -, 但しm=0~12、好ましくは1~5、又は (C<sub>6</sub> ~ C<sub>14</sub>) -アリーレンを表し、そしてnは2~10000、好ましくは5~5000の整数を表す〕荷電されていない又はカチオンのポリチオフェンを含む、上記1のエレトロルミネセンス組立て品。

【0116】3. 孔注入帯域が式 (Ia) 又は (Ib)

【0117】

【化30】

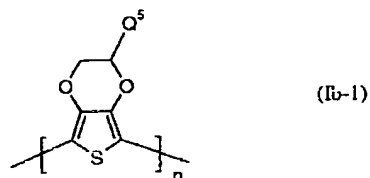
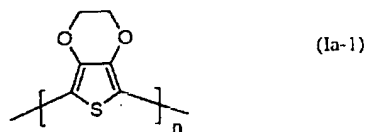


〔式中、Q³ 及び Q⁴ は互いに独立に水素或いは置換又は未置換の (C<sub>1</sub> ~ C<sub>18</sub>) -アルキル、(C<sub>2</sub> ~ C<sub>12</sub>) -アルケニル、(C<sub>3</sub> ~ C<sub>7</sub>) -シクロアルキル、(C<sub>7</sub> ~ C<sub>15</sub>) -アラルキル、(C<sub>6</sub> ~ C<sub>10</sub>) -アリール、(C<sub>1</sub> ~ C<sub>18</sub>) -アルコキシ又は (C<sub>2</sub> ~ C<sub>18</sub>) -アルキロキシエステルを表し、及びQ⁵ 及びQ⁶ は互いに独立に水素或いはそれぞれ少なくとも1つのスルホネート基で置換された (C<sub>1</sub> ~ C<sub>18</sub>) -アルキル、(C<sub>2</sub> ~ C<sub>12</sub>) -アルケニル、(C<sub>3</sub> ~ C<sub>7</sub>) -シクロアルキル、(C<sub>7</sub> ~ C<sub>15</sub>) -アラルキル、(C<sub>6</sub> ~ C<sub>10</sub>) -アリール、(C<sub>1</sub> ~ C<sub>18</sub>) -アルコキシ又は (C<sub>2</sub> ~ C<sub>18</sub>) -アルキロキシエステルを表し、但しQ⁵ が水素を表すならばQ⁶ は水素でなく、また又Q⁶ が水素を表すならばQ⁵ は水素でなく、そしてnは2~10000の整数を表す〕荷電されていない又はカチオンのポリチオフェン或いはこれらの混合物を含む、上記1のエレトロルミネセンス組立て品。

【0118】4. カチオンの又は荷電されて無いポリチオフェンが式 (Ia-1) および (Ib-1)

【0119】

【化31】



〔式中、Q⁵およびnは上記1に定義した通りである〕を有する、上記3のエレトロルミネセンス組立て品。

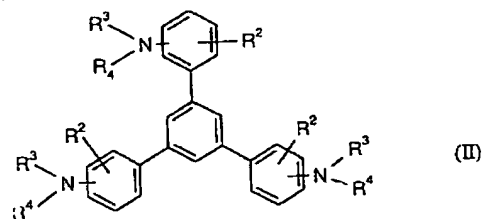
【0120】5. 重合体カルボン酸および/又は重合体スルホン酸がポリアニオンとして存在する、上記1~4のいずれかのエレトロルミネセンス組立て品。

【0121】6. ポリスチレンスルホン酸及び/又はそのアルカリ土類金属が対イオンとして存在する、上記1~5のいずれかのエレトロルミネセンス組立て品。

【0122】7. 正孔注入及び/又は正孔輸送帯域が一般式

【0123】

【化32】



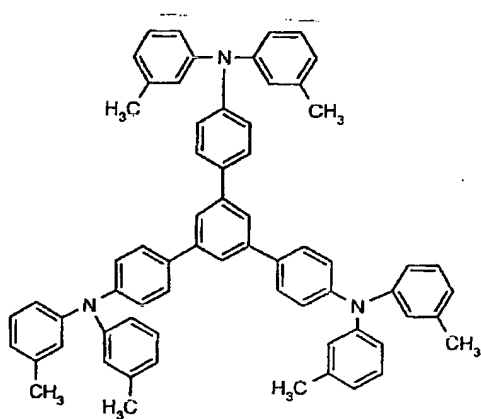
〔式中、R² は水素、置換又は未置換アルキル、又はハロゲンを表し、R³ 及びR⁴ は、互いに独立に、置換又は未置換 (C<sub>1</sub> ~ C<sub>10</sub>) -アルキル、アルコキシカルボニル置換 (C<sub>1</sub> ~ C<sub>10</sub>) -アルキル、或いは置換又は未置換アリール、アラルキル又はシクロアルキルを表す〕の芳香族第3級アミノ化合物を含む、上記1のエレトロルミネセンス組立て品。

【0124】8. 式 (II) において、R² が水素又は (C<sub>1</sub> ~ C<sub>6</sub>) -アルキルを表し、R³ 及びR⁴ が、互いに独立に、(C<sub>1</sub> ~ C<sub>6</sub>) -アルキル、(C<sub>1</sub> ~ C<sub>4</sub>) -アルコキシカルボニル (C<sub>1</sub> ~ C<sub>6</sub>) -アルキル、或いは未置換又は (C<sub>1</sub> ~ C<sub>4</sub>) -アルキル及び/又は (C<sub>1</sub> ~ C<sub>4</sub>) -アルコキシ置換フェニル、ナフチル、フェニル (C<sub>1</sub> ~ C<sub>4</sub>) -アルキル、ナフチル (C<sub>1</sub> ~ C<sub>4</sub>) -アルキル、シクロペンチル又はシクロヘキシルを表す、上記2のエレトロルミネセンス組立て品。

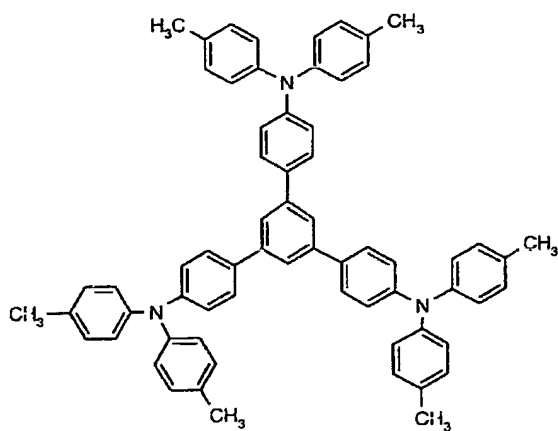
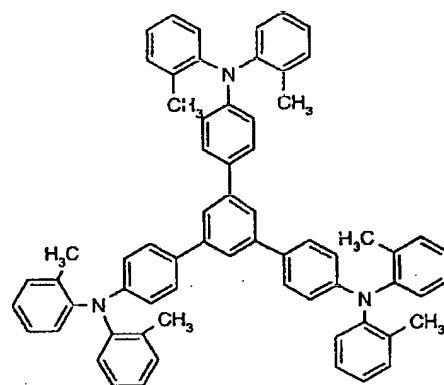
【0125】9. 第3級アミノ化合物が次の化合物

【0126】

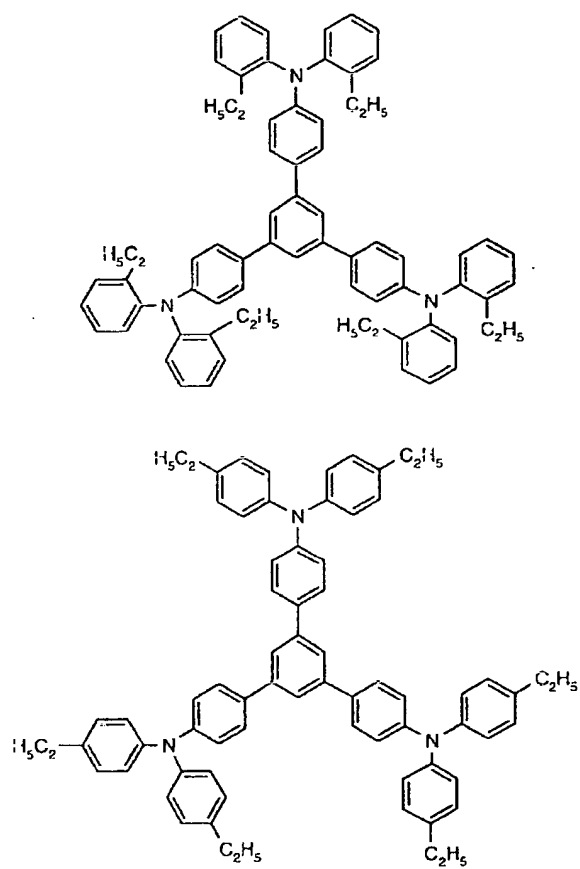
【化33】



【0127】  
【化34】



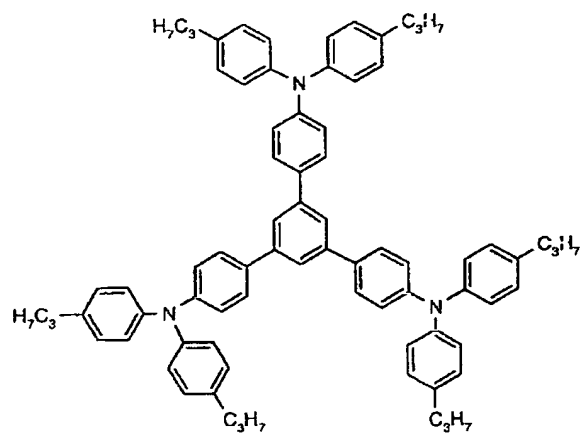
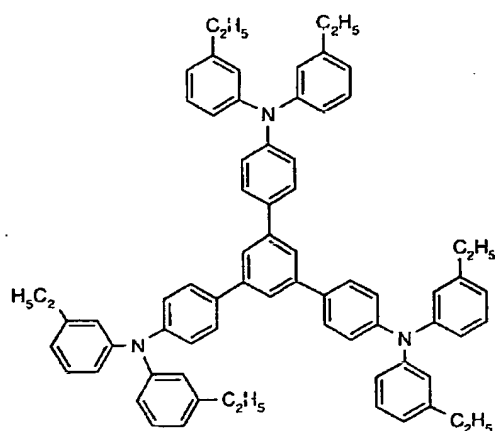
【0128】  
【化35】



【0129】

【化36】

(24) 100-150163 (P2000-150163A)



【0130】

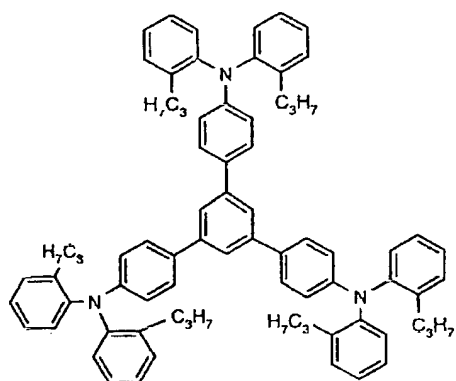
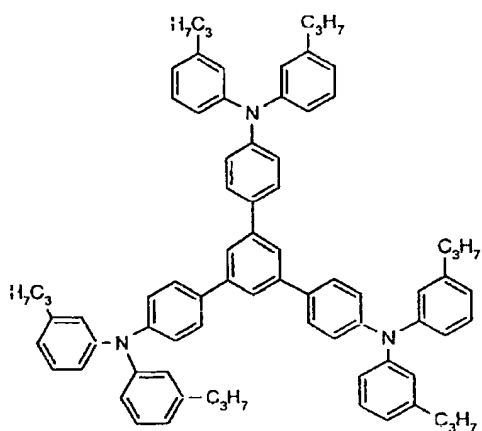
【化37】

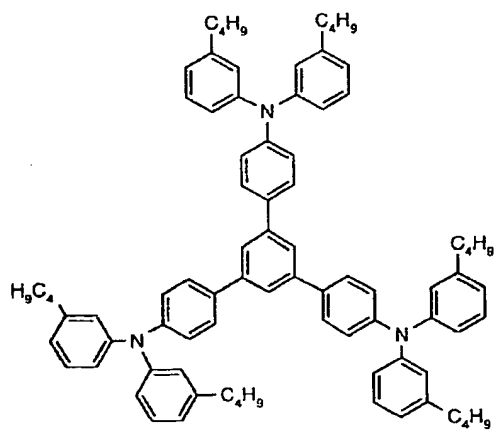
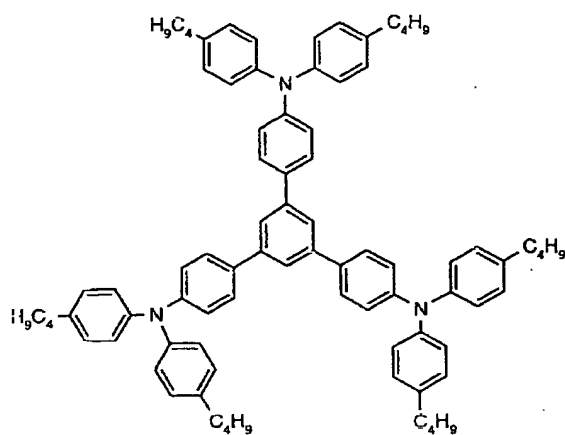


(25) 00-150163 (P2000-150163A)

【0131】

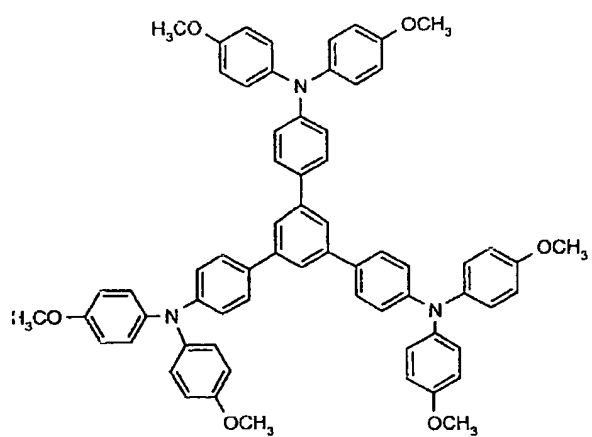
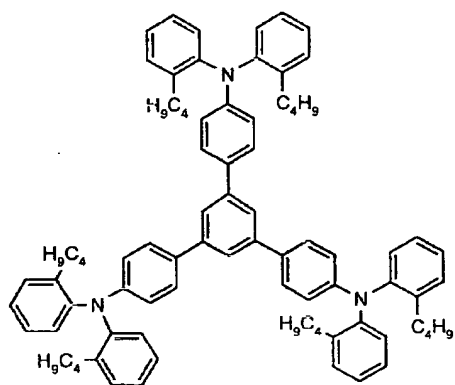
【化38】





【0132】

【化39】

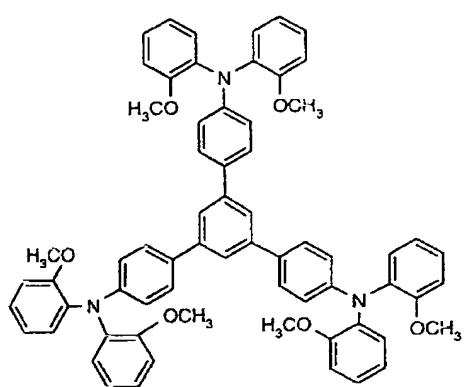
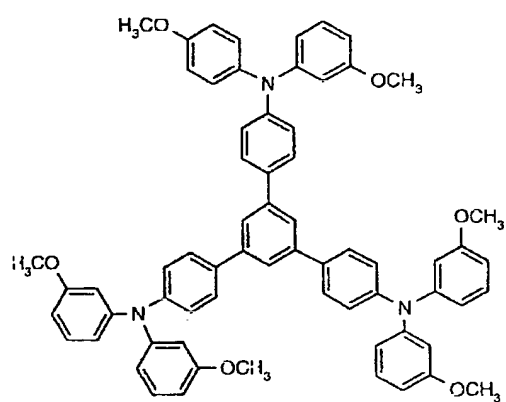


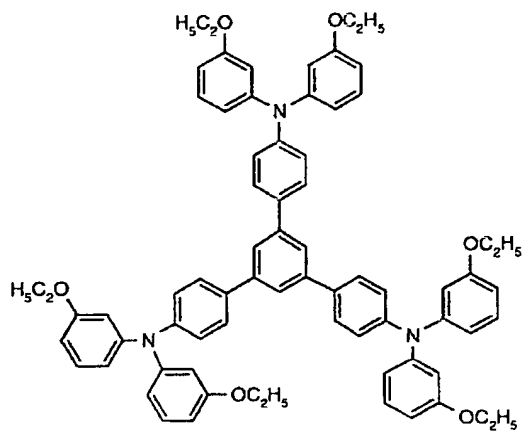
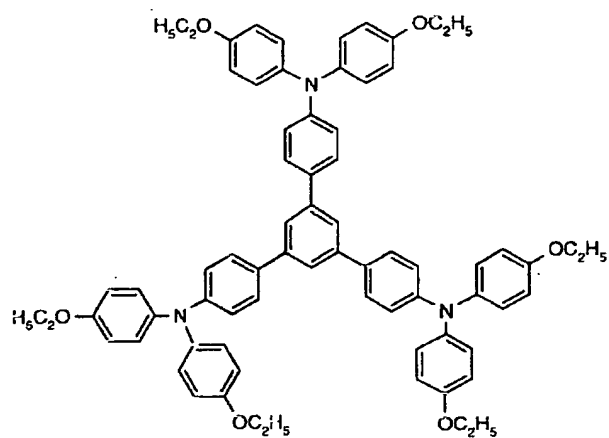
【0133】  
【化40】

(28) 00-150163 (P2000-150163A)

【0134】

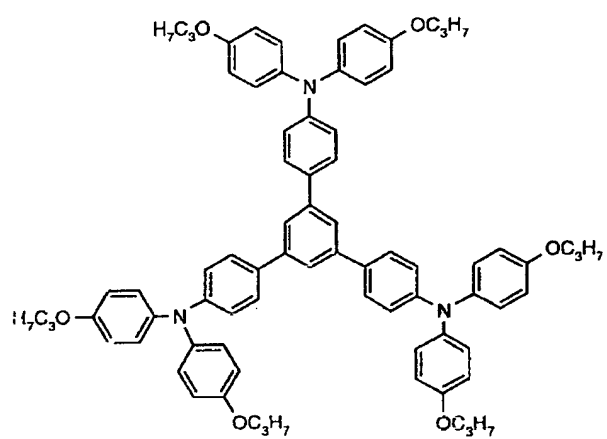
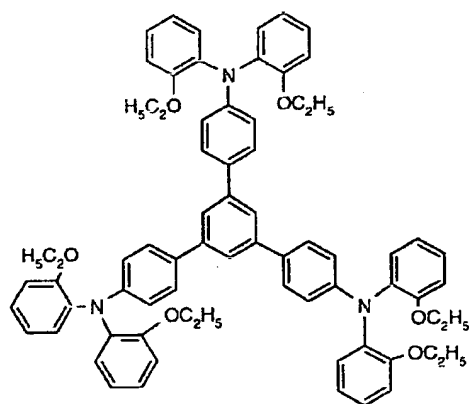
【化41】





[0135]

[化42]



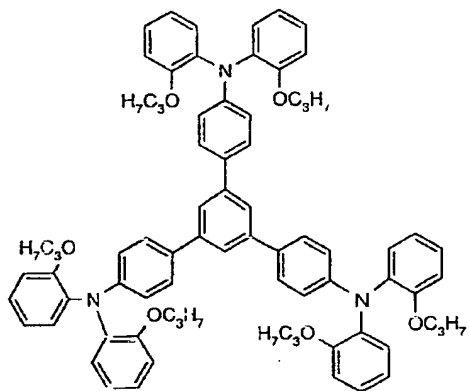
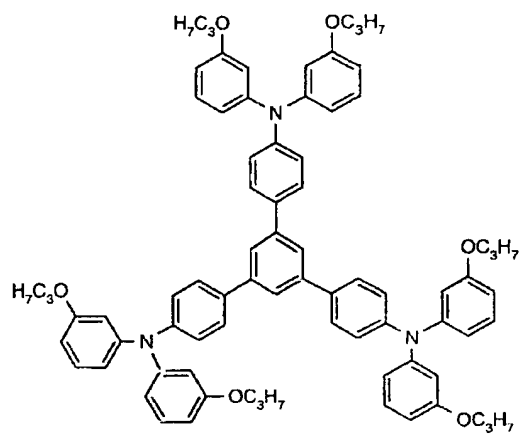
【0136】

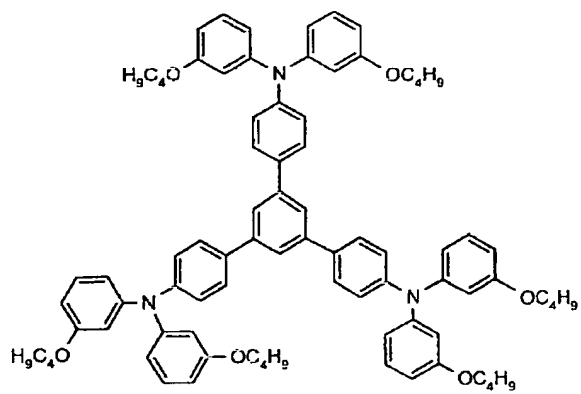
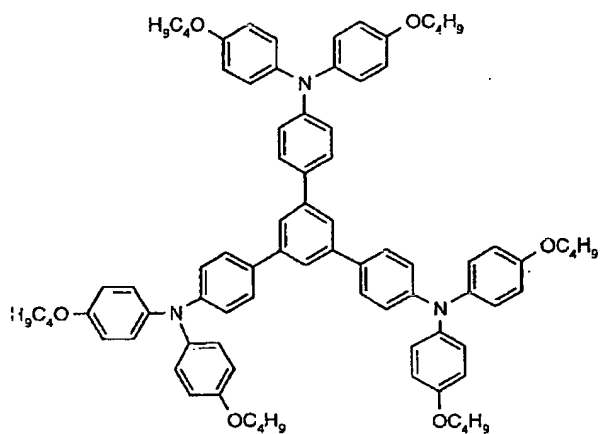
【化43】

(S1) 00-150163 (P2000-150163A)

【0137】

【化44】

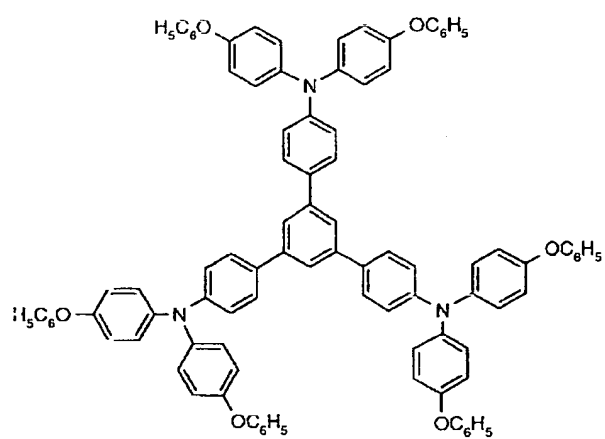
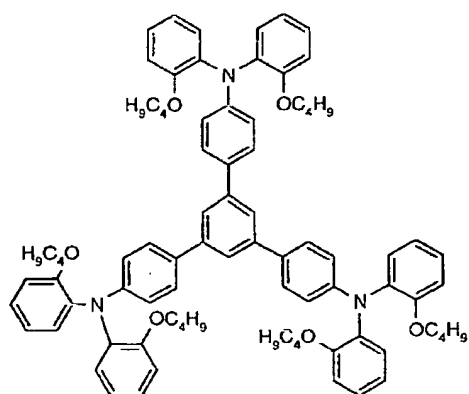




【0138】

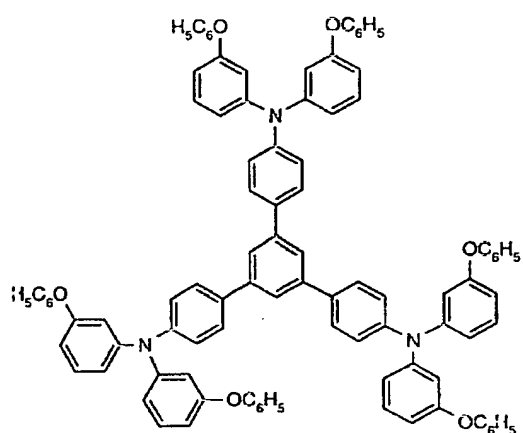
【化45】



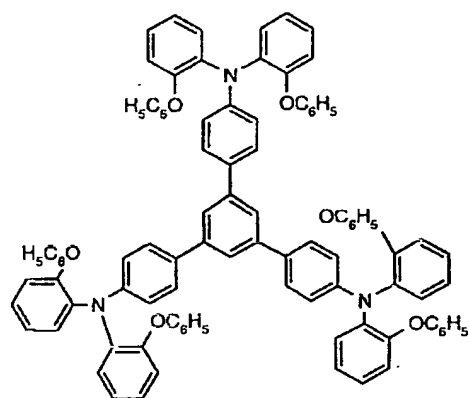


【0139】

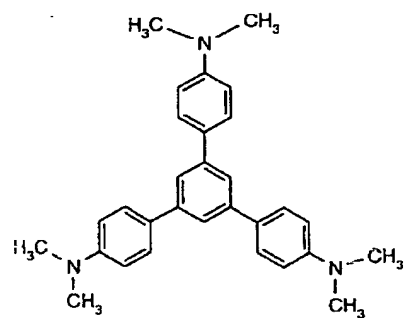
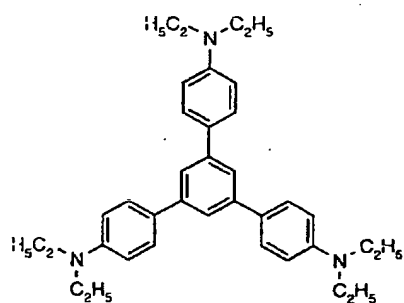
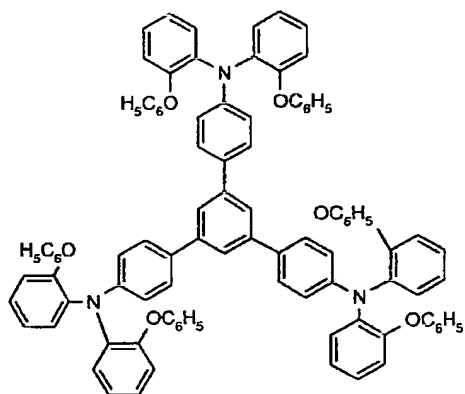
【化46】

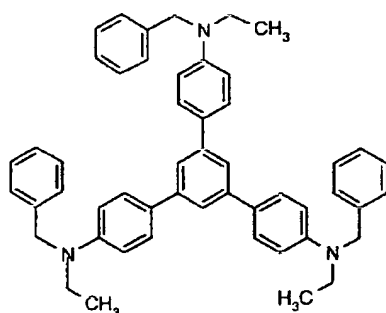
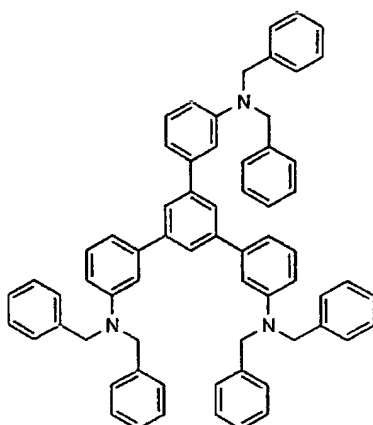


【0140】  
【化47】



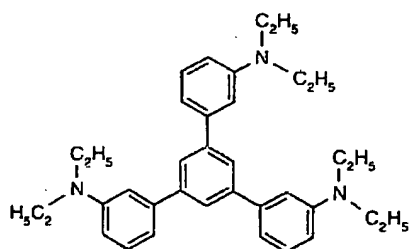
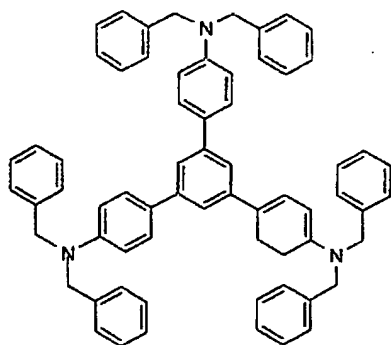
【0141】  
【化48】





【0142】

【化49】

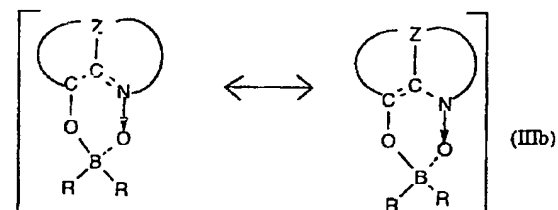
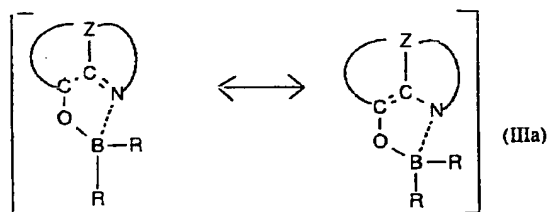


の中から選択される、上記7のエレクトロルミネセンス組立て品。

【0143】10. 硼素錯体が一般式(IIIa)～(IIIg)

【0144】

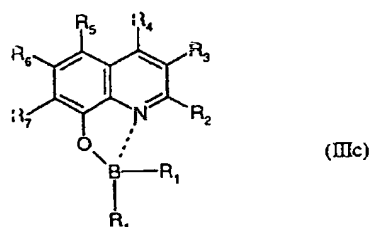
【化50】



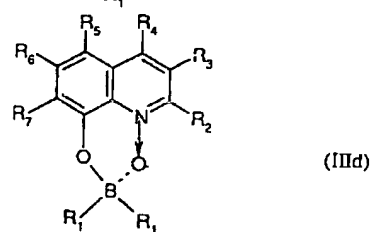
[式中、Zは少なくとも2つの融合環を含んでなる構造を完成する原子を表し、Rはアリール基又はF原子を表す]

【0145】

【化51】



(IIIc)

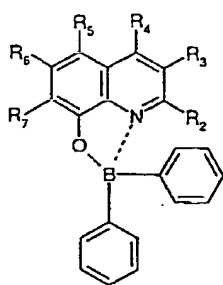


(IIIId)

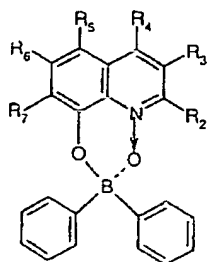
[式中、R<sub>1</sub>は置換又は未置換(C<sub>6</sub>～C<sub>10</sub>)-アリール又はハロゲンを表し、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>は、互いに独立に、水素、置換もしくは未置換(C<sub>1</sub>～C<sub>16</sub>)-アルキル又はハロゲン或いはスルホンアミド又はシアノ又は置換もしくは未置換アミノ基を表す]

【0146】

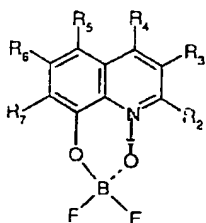
【化52】



(IIIe)



(III f)



(III g)

[式中、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 、 $R_6$  及び  $R_7$  は、互

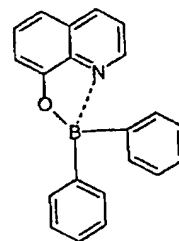
いに独立に、水素、置換もしくは未置換 ( $C_1 \sim C_{16}$ )  
ーアルキル又はハロゲン或いはスルホンアミド又はシア  
ノ又は置換もしくは未置換アミノ基を表す]の化合物の  
中から選択される化合物である、上記1のエレトロル  
ミネセンス組立て品。

【0147】11. 透明な結合剤がポリカーボネート、  
ポリエステルカーボネート、スチレンの共重合体、ポリ  
スルホン、ビニル含有単量体に基づく重合体、ポリオレ  
フィン、環式オレフィン共重合体及びフェノキシ樹脂か  
らなる群から選択される、上記1のエレトロルミネセ  
ンス組立て品。

【0148】12. 硼素化合物が群

【0149】

【化53】

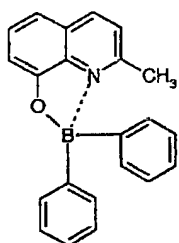


(B1)

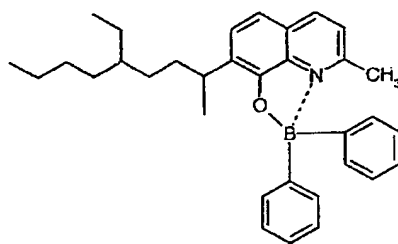
【0150】

【化54】

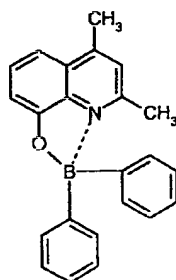
B2)



B3)



B4)

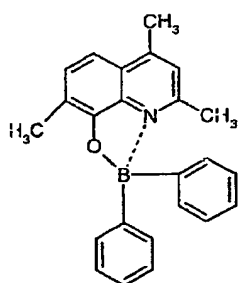


[0151]

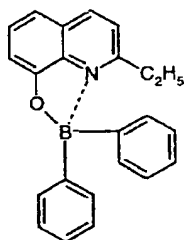
[化55]

【0152】  
【化56】

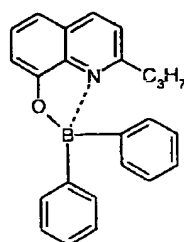
B5)



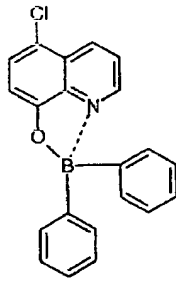
B6)



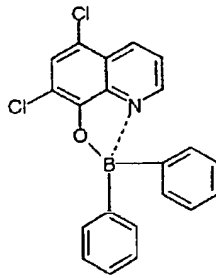
B7)



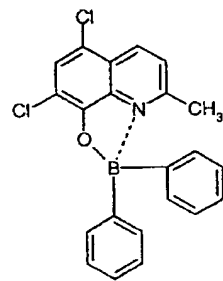
B8)



B9)



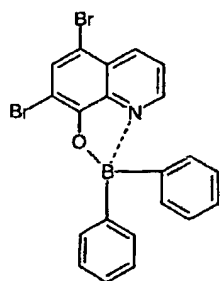
B10)



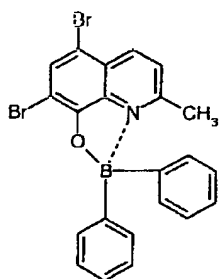
【0153】

【化57】

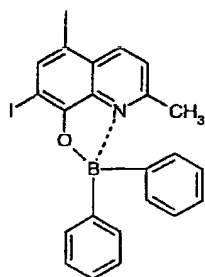
**B11)**



B12)

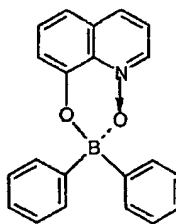


B13)

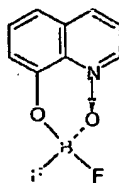


【0154】  
【化58】

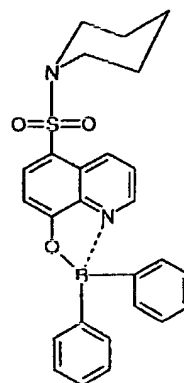
B14)



B15}

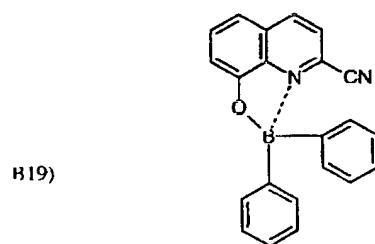
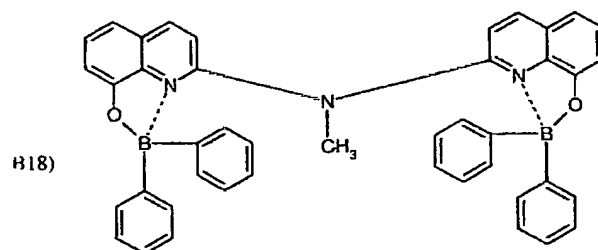
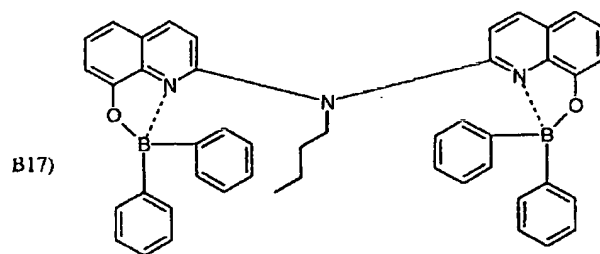


B16)



【0155】  
【化59】





の化合物の中から選択される、上記1のエレトロルミ      ネセンス組立て品。

---

フロントページの続き

(72)発明者    ロルフ・ベーマン  
              ドイツ47800クレーフェルト・シヤイブラ  
              ーシュトラッセ101

(72)発明者    アンドレアス・エルシュナー  
              ドイツ45479ミユルハイム・レダーシュト  
              ラーセ6